

Struktur dan Sifat Optik Film ZnO Hasil Deposisi dengan Teknik Spin-Coating Melalui Proses Sol-Gel (Akhiruddin Maddu)

## STRUKTUR DAN SIFAT OPTIK FILM ZnO HASIL DEPOSISI DENGAN TEKNIK *SPIN-COATING* MELALUI PROSES *SOL-GEL*

Akhiruddin Maddu, Chandra A. Basuki, Irmansyah dan Sidikrubadi Pramudito

Departemen Fisika, FMIPA - IPB

Kampus IPB Darmaga, Bogor

### ABSTRAK

**STRUKTUR DAN SIFAT OPTIK FILM ZnO HASIL DEPOSISI DENGAN TEKNIK *SPIN-COATING* MELALUI PROSES *SOL-GEL*.** Film ZnO telah dibuat pada substrat kaca dengan teknik deposisi *spin coating* melalui proses *sol-gel*. Pembuatan film ZnO dari prekursor *zinc acetate* dengan laju putaran 3.000 rpm selama 60 detik di atas pelat *spin coater*. Film yang diperoleh dikeringkan pada suhu ruang kemudian dilakukan *annealing* pada suhu 500 °C selama 3 jam. Hasil XRD menunjukkan bahwa film ZnO yang terbentuk adalah polikristal *wurtzite* heksagonal dengan nilai parameter kisi masing-masing adalah  $a = 3,290 \text{ \AA}$  dan  $c = 5,2531 \text{ \AA}$ . Ukuran kristal rata-rata ZnO adalah 29,554 nm. Berdasarkan morfologi permukaan hasil foto SEM menunjukkan film ZnO berbentuk lempengan-lempengan (*disks*) yang tidak seragam dan tidak beraturan. Karakterisasi spektroskopi UV-Vis menghasilkan karakteristik optik film ZnO, yaitu spektrum transmitansi optik dalam rentang panjang gelombang 370 nm sampai dengan 970 nm. Dari data spektrum UV-Vis tersebut ditentukan lebar celah energi ZnO sebesar 3,2 eV.

**Kata kunci :** Film ZnO, sol-gel, spin coating, celah energi ( $E_g$ )

### ABSTRACT

**STRUCTURE AND OPTICAL PROPERTIES OF ZnO FILM PREPARED BY SPIN COATING VIA SOL-GEL PROCESS.** ZnO films have been made on ITO glass substrate by spin coating via sol-gel process. ZnO film prepared from Zinc acetate precursor with spinning speed of 3000 rpm for 60 minutes. The film sample obtained was dried at room temperature, then annealed at 500 °C for 3 h. The surface morphology analyzed by SEM show that the ZnO film in disk form crystallites. XRD result show that structure of ZnO film is hexagonal polycrystalline with lattice parameters are  $a = 3.290 \text{ \AA}$  and  $c = 5.2531 \text{ \AA}$ . The average crystallite size of ZnO film is 29.554 nm. UV-Vis spectroscopy characterization exhibits the optical transmittance of ZnO film in the wavelength range of 370 nm – 970 nm. The UV-Vis spectroscopy results show that the optical bandgap of ZnO is 3.2 eV.

**Key words :** ZnO Film sol-gel, spin coating, optical bandgap ( $E_g$ )

### PENDAHULUAN

ZnO adalah bahan semikonduktor senyawa II-VI dengan celah pita langsung (*direct bandgap*) lebar sekitar 3,3 eV [1-3]. ZnO mempunyai struktur kristal *wurtzite* heksagonal, dengan nilai parameter kisi  $a = 3,249 \text{ \AA}$  dan  $c = 5,206 \text{ \AA}$  [2,3]. Bahan semikonduktor ZnO ini memiliki potensi aplikasi dalam berbagai bidang teknologi seperti piranti optoelektronik, sensor gas, dan berbagai aplikasi elektronik lainnya. Dalam bidang optoelektronik, bahan ZnO merupakan komponen penting pada piranti sel surya [3], LED dan dioda Laser [4,5], dan sebagai lapisan konduktif transparan pada substrat kaca [6,7]. ZnO juga dimanfaatkan sebagai piranti gelombang akustik permukaan [5]. Sebagai sensor gas, bahan ZnO sensitif terhadap beberapa gas seperti hidrokarbon, oksigen, karbon monoksida, dan sebagainya [8,9].

Dalam berbagai aplikasi, khususnya sebagai komponen piranti optoelektronik, bahan ZnO biasanya dibuat dalam bentuk lapisan (*film*) tipis. Film ZnO dapat dibuat dengan berbagai metode, seperti elektrodposisi [2,3,10], *sol-gel dip coating* dan *spin coating* [6,8,11,12], *sputtering* [14], *pulsed laser deposition* [7], dan deposisi kimia (*chemical bath deposition*) [1,4].

Studi tentang struktur dan sifat optik film ZnO sangat luas dilakukan karena aplikasinya yang sangat variatif. Sifat optik merupakan aspek yang paling luas dikaji karena aplikasi ZnO yang luas dalam bidang optoelektronik [2,7,10,11]. Studi sifat optik meliputi sifat absorpsi optik [2,7,12], fotoluminesens [3,7,11] dan elektromunisens [4,5] untuk mengetahui respon optiknya serta efek luminesens. Terkait dengan sifat absorpsi optiknya, dapat pula ditentukan lebar pita optiknya

khusus untuk aplikasi sebagai sel surya dan piranti optoelektronik lainnya [1,2,10].

Absorpsi fundamental, yang bersesuaian dengan eksitasi elektron dari pita valensi ke pita konduksi semikonduktor, dapat digunakan untuk menentukan sifat (alami) dan celah pita optik bahan semikonduktor. Hubungan antara koefisien absorpsi ( $\alpha$ ) dan energi foton datang ( $h\nu$ ) dapat ditulis sebagai [13],

$$(\alpha h\nu)^{1/n} = A(h\nu - E_g) \dots\dots\dots (1)$$

$A$  adalah sebuah konstanta dan  $E_g$  adalah lebar celah pita optik bahan semikonduktor, sedangkan eksponen  $n$  bergantung pada jenis transisi di dalam bahan. Untuk transisi langsung  $n = 1/2$  dan untuk transisi tak langsung  $n = 2$ . Koefisien absorpsi ( $\alpha$ ) ditentukan berdasarkan data absorbansi atau transmitansi untuk setiap panjang gelombang melalui hubungan fundamental, yaitu

$$I = I_0 \exp(-\alpha t) \dots\dots\dots (2)$$

dimana  $I$  adalah intensitas cahaya yang ditransmisikan melewati sampel film,  $I_0$  adalah intensitas cahaya datang, dan  $t$  adalah ketebalan sampel film.

Absorbansi dituliskan sebagai

$$A = \log \frac{I_0}{I} = -\log T \dots\dots\dots (3)$$

sehingga koefisien absorpsi ( $\alpha$ ) dapat dituliskan sebagai [14]

$$\alpha = 2,303 \frac{A}{t} \dots\dots\dots (5)$$

Sedangkan hubungan antara transmitansi dan reflektansi diberikan oleh persamaan berikut [15,16],

$$T = (1 - R)^2 \exp(-\alpha t) \dots\dots\dots (6)$$

dengan  $T$  adalah transmitansi dan  $R$  adalah reflektansi film. Dengan mengetahui ketebalan film dan nilai transmitansi, maka nilai reflektansi fungsi panjang gelombang dapat ditentukan.

Untuk menentukan nilai indeks bias optik film pada setiap panjang gelombang digunakan persamaan koefisien Fresnel untuk reflektansi ( $R$ ), yaitu

$$R = \frac{(n_2 - n_1)^2}{(n_2 + n_1)^2} \dots\dots\dots (7)$$

$n_2$  adalah indeks bias film dan  $n_1=1$  adalah indeks bias udara, sehingga indeks bias film fungsi panjang gelombang dapat ditulis [16]

$$n_2 = \frac{(1 + R^{1/2})}{(1 - R^{1/2})} \dots\dots\dots (8)$$

Formulasi diatas hanya berlaku untuk kondisi dimana cahaya datang tegak lurus terhadap permukaan film.

## METODE PERCOBAAN

### Bahan dan Alat

Bahan dan alat penelitian yang digunakan antara lain : *zinc acetate dihydrate* ( $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ), asam nitrat, amonia, aseton, aquades, dan substrat kaca berlapis ITO. Sedangkan peralatan yang digunakan adalah termometer, gelas ukur, *spin coater*, seperangkat alat XRD (*X-Ray Diffraction*), *Hotplate magnetic stirrer*, Spektrofotometer *UV-Vis*, tungku (*furnace*) dan *pH meter*.

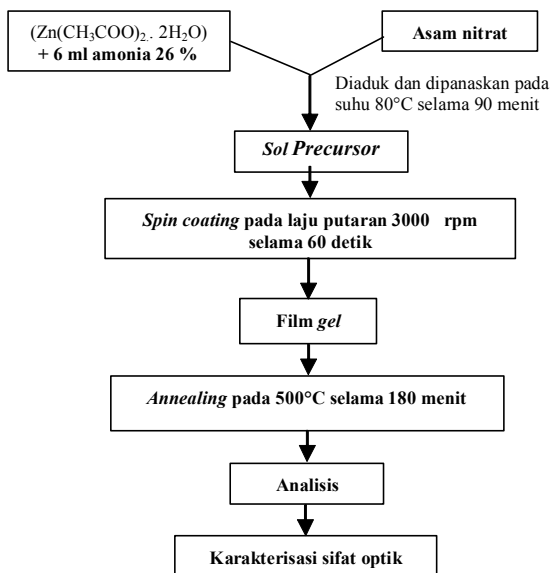
### Pembuatan Film ZnO

Film ZnO dibuat pada substrat kaca berlapis ITO (*Indium Tin Oxide*) dengan metode *spin coating* melalui proses *sol-gel* mengadopsi L. Z. Zhang [11] dan T. Kawahara [12]. Pertama-tama dibuat *sol* ZnO dari larutan *zinc acetate dihydrate*, ( $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ), asam nitrat 21 %, amonia 26 %, aseton dan aquades. Untuk membuat *sol* ZnO, 30 mL larutan *zinc acetate* dicampur dengan 6 mL amonia 26 %, diaduk beberapa saat kemudian ditambahkan asam nitrat 21 % sedikit demi sedikit hingga mencapai pH = 6. Campuran ini diletakkan diatas pelat pemanas dilengkapi pengaduk magnetik, lalu diaduk selama 90 menit sambil dipanaskan pada suhu 80 °C hingga terbentuk *sol* sebagai prekursor pembuatan *film* ZnO. Setelah *sol* terbentuk, segera dilakukan pembuatan *film* ZnO dengan teknik *spin coating* pada substrat kaca berlapis ITO. Sebelumnya substrat lebih dahulu dibersihkan dengan aseton di dalam *ultrasonic cleaner* kemudian dibilas dengan aquades. Substrat kaca ITO diletakkan diatas pelat *spin coater* dan prekursor diteteskan diatas substrat kemudian diputar (*spinning*) selama 30 detik pada laju 3000 rpm. Substrat *film gel* ZnO dikeringkan pada suhu ruang selama 60 menit, kemudian dipanaskan pada suhu 500°C selama 180 menit di dalam tungku. Pemanasan ini dimaksudkan untuk menghilangkan residu pada film juga dalam rangka proses kristalisasi film ZnO.

### Karakterisasi Film ZnO

Untuk mengetahui sifat dan kualitas film ZnO, dilakukan karakterisasi terhadap sampel film ZnO yang diperoleh. Struktur kristal film ZnO dianalisis dengan metode difraksi sinar-X (XRD), film ZnO dipindai pada rentang sudut  $2\theta$  dari 20° sampai dengan 80° menggunakan peralatan XRD dengan sumber tegangan 30 kV dan arus 20mA. Sumber sinar-X menggunakan  $\text{CuK}\alpha$  yang menghasilkan panjang gelombang 0,154 nm. Sedangkan untuk mengamati morfologi permukaan dilakukan dengan *Scanning Electron Microscopy* (SEM). Sifat optik film ZnO diamati dengan menggunakan spektrofotometer *UV-Vis*, data yang diperoleh berupa karakteristik spektrum transmitansi film ZnO. Data

spektrum transmitansi akan digunakan pula untuk menentukan celah pita optik film ZnO. Sedangkan karakteristik reflektansi dan indeks bias ( $n$ ) film ZnO diperoleh melalui perhitungan berdasarkan data reflektansi menggunakan persamaan (8). skema penelitian ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Alur kerja penelitian

## HASIL DAN PEMBAHASAN

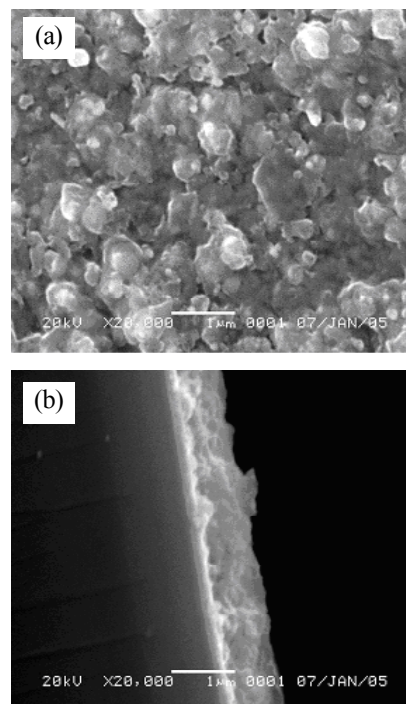
### Morfologi dan Struktur Film ZnO

Film semikonduktor ZnO dibuat melalui proses sol-gel dengan teknik deposisi *spin coating* dengan laju putaran 3000 rpm pada substrat kaca berlapis ITO. Film dipanaskan (*annealing*) pada suhu 500 °C selama 1 jam. Proses penumbuhan film ZnO dapat diamati melalui rekaman morfologi dengan mikroskop elektron (SEM) dan analisis struktur kristal dengan difraksi sinar-X (XRD).

Pada Gambar 2a memperlihatkan morfologi permukaan film. Distribusi butiran-butiran kristalit berbentuk lempengan-lempengan (*disks*) tidak seragam dan tidak merata, namun kompak. Lempengan-lempengan ini terbentuk akibat pemanasan pada suhu yang cukup tinggi, 500 °C selama 3 jam. Ukuran butiran atau kristalit sulit ditentukan dari hasil foto SEM karena tidak tampak batas-batas butir yang jelas serta ketidakseragaman butirannya.

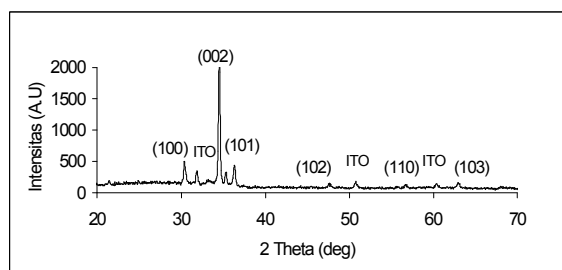
Penampang lintang film ZnO diperlihatkan pada Gambar 2b, tampak film ZnO tumbuh pada substrat kaca ITO dengan permukaan yang tidak benar-benar rata. Ketebalan film diukur secara manual berdasarkan skala pada foto penampang lintang film ZnO dengan SEM, diperoleh ketebalan film sekitar 1,1  $\mu\text{m}$ .

Pola-pola difraksi melalui karakterisasi XRD film ZnO diperlihatkan pada difraktogram sinar-X (Gambar 3). Puncak-puncak karakteristik ZnO dengan



Gambar 2. Foto SEM film ZnO, (a) morfologi permukaan dan (b) penampang

intensitas tertinggi pada sudut  $2\theta = 34,385^\circ$  yang sangat dominan dibandingkan puncak-puncak lainnya. Puncak ini bersesuaian dengan bidang kristal (002) sebagai orientasi yang disukai (*preferred orientation*). Pola-pola difraksi berikutnya berturut-turut muncul pada  $31,775^\circ$ ;  $36,327^\circ$ ;  $47,490^\circ$ ;  $56,594^\circ$  dan  $62,880^\circ$ , masing-masing bersesuaian dengan bidang kristal (100), (002), (101), (110) dan (103). Berdasarkan pola-pola difraksi ini, diketahui bahwa film ZnO telah mengalami kristalisasi dengan baik. Proses kristalisasi ini sangat dipengaruhi oleh perlakuan pemanasan (*annealing*) sampel film ZnO pada suhu 500 °C. Pada difraktogram juga tampak beberapa puncak karakteristik ITO sebagai substrat, walaupun tidak cukup dominan dibandingkan puncak-puncak karakteristik ZnO.



Gambar 3. Pola difraksi sinar-X (difraktogram) film ZnO

Berdasarkan pola-pola difraksi, tampak bahwa hampir semua puncak karakteristik ZnO muncul, sehingga sampel ZnO merupakan polikristal. Penumbuhan kristal ZnO berlangsung dengan baik melalui proses pembuatan dan kondisi *annealing* pada sampel film ZnO. Hasil ini

mirip dengan hasil penelitian sebelumnya [1,3,4,8]. Puncak-puncak karakteristik film ZnO dengan bidang kristal (*hkl*) yang bersesuaian serta jarak antar bidang kristal (*d*) dirangkum pada Tabel 1.

**Tabel 1.** Nilai *hkl* dan jarak bidang kristal (*d*) film ZnO.

<i>hkl</i>	2θ (deg)	<i>d</i> (Å)
100	31,775°	2,8137
002	34,385°	2,6071
101	36,327°	2,4709
102	47,490°	1,9129
110	56,594°	1,6249
103	62,88°	1,4767

Puncak-puncak utama yang muncul pada pola-pola difraksi bersesuaian dengan struktur heksagonal (*wurtzite*) bahan ZnO. Parameter kisi heksagonal *a* dan *c* ditentukan melalui perhitungan menggunakan metode Cohen berdasarkan data jarak antar bidang kristal,  $d_{hkl}$ , yang diperoleh dari puncak-puncak XRD. Untuk struktur heksagonal digunakan hubungan [1,17]

$$d_{hkl}^{-2} = \frac{4(h^2 + hk + k^2)}{3a^2} + \frac{l^2}{c^2} \dots\dots\dots (9)$$

Nilai parameter kisi heksagonal film ZnO yang diperoleh berdasarkan perhitungan di atas, masing-masing adalah  $a = 3,290 \text{ \AA}$  dan nilai  $c = 5,253 \text{ \AA}$ . Nilai parameter kisi yang didapatkan telah mendekati nilai *a* dan *c* standar untuk ZnO yaitu  $a = 3,25 \text{ \AA}$  dan  $c = 5,21 \text{ \AA}$ , hasil ini sama dengan yang diperoleh oleh A.E. Rakhshani [1] dan R.E. Marotti [10].

Ukuran kristal ZnO ditentukan berdasarkan nilai *FWHM*, yaitu lebar puncak setengah maksimum untuk masing-masing puncak pada pola-pola difraksi yang diperoleh dari data XRD. Penentuan ukuran kristal ZnO dengan menggunakan persamaan Scherer [1,10,17],

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta} \dots\dots\dots (10)$$

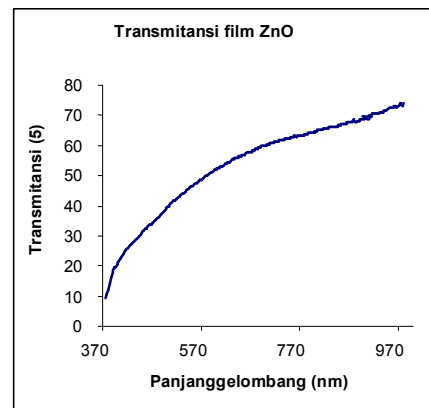
dengan *D* adalah ukuran kristal,  $\lambda = 0,154 \text{ nm}$  adalah panjang gelombang sumber sinar-X,  $\beta$  adalah lebar puncak setengah maksimum (*FWHM*) masing-masing puncak,  $\theta$  adalah sudut difraksi dan  $k \approx 0,94$  adalah sebuah konstanta. Dari hasil perhitungan didapatkan ukuran kristal rata-rata film ZnO adalah  $29,554 \text{ nm}$ , bersesuaian dengan nilai *FWHM* pada pola difraksi sinar-X.

## Sifat Optik dan Celah Pita Film ZnO

Sifat optik bahan semikonduktor ZnO diamati berdasarkan karakteristik absorpsi atau transmitansi optik menggunakan spektrofotometer *UV-Vis*.

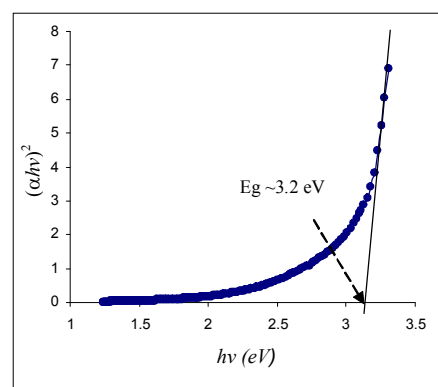
Spektrum transmitansi optik sampel film ZnO ditunjukkan pada Gambar 4, yang memperlihatkan bahwa

film ZnO melewati cahaya tampak dan inframerah dan tidak melewati cahaya *ultra violet (UV)*. Kurva transmitansi terhadap panjang gelombang memperlihatkan nilai intensitas transmitansi film ZnO pada rentang di atas  $500 \text{ nm}$  di atas 50%. Intensitas transmisi optik yang rendah pada rentang spektrum tampak, diakibatkan oleh ketebalan film yang cukup besar, sekitar  $1,1 \text{ \mu m}$  dan juga karena film yang kurang transparan (semi transparan), juga transisi optik pada kurva transmitansi tidak begitu jelas.



**Gambar 4.** Karakteristik transmisi optik film ZnO

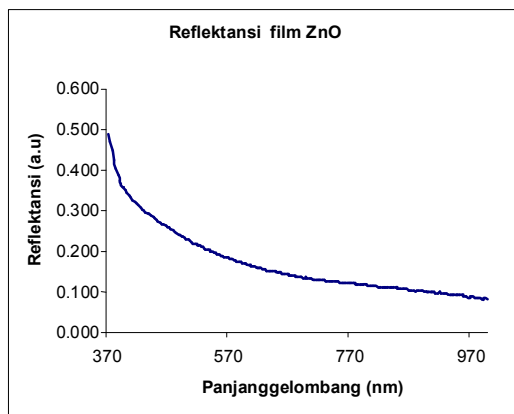
Untuk menentukan transisi yang mungkin dan celah pita yang bersesuaian untuk film ZnO, dibuat plot antara  $(\alpha h\nu)^{1/n}$  terhadap  $h\nu$ , dengan menggunakan persamaan (1). Untuk film ZnO diambil  $n = 1/2$  karena bahan ZnO merupakan bahan semikonduktor dengan celah pita transisi langsung [1-3]. Kurva *plot*  $(\alpha h\nu)^2$  terhadap  $h\nu$  film ZnO diperlihatkan pada Gambar 5, yang bersesuaian dengan kurva transmittansinya. Transisi optik pada kurva transmitansi tidak begitu jelas, namun demikian kurva ini masih dapat digunakan untuk menentukan nilai lebar celah pita optik sampel film ZnO. Berdasarkan persamaan (1), nilai celah pita optik film ZnO ditentukan dari ekstrapolasi bagian linier kurva yang berpotongan dengan sumbu  $h\nu$ , sehingga diperoleh sekitar  $3,2 \text{ eV}$  yang bersesuaian



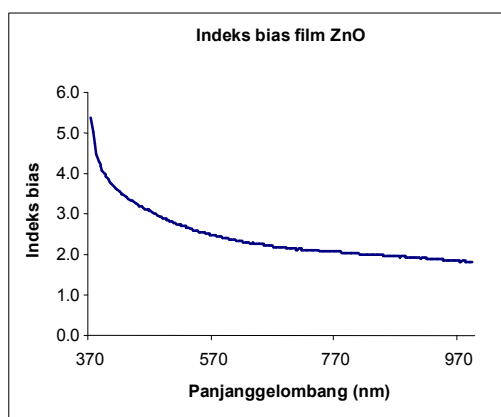
**Gambar 5.** Plot  $(\alpha h\nu)^2$  terhadap energi foton absorpsi ( $h\nu$ )

dengan energi transisi (eksitasi) elektron di dalam bahan ZnO. Hasil ini mendekati hasil-hasil penelitian sebelumnya [1,2,4,6].

Spektrum reflektansi (R) ditentukan berdasarkan spektrum transmitansi optik yang diperoleh dari spektrofotometer *UV-Vis*, dan dihitung dengan menggunakan persamaan (6). Sedangkan nilai indeks bias film ZnO dihitung berdasarkan nilai reflektansi hasil perhitungan tadi dengan menggunakan persamaan (8). Kurva spektrum reflektansi (R) hasil perhitungan ditunjukkan pada Gambar 6, sedangkan nilai indeks bias film ZnO dalam rentang panjang gelombang 370 nm sampai dengan 970 nm ditunjukkan pada Gambar 7. Tampak pada kurva reflektansi, bahwa film ZnO memantulkan dengan kuat spektrum *ultra violet* (UV) dan hanya sedikit memantulkan spektrum tampak (*visible*). Sedangkan kurva nilai indeks bias memperlihatkan nilai indeks bias film ZnO bervariasi terhadap panjang gelombang foton, dimana nilainya sekitar 5 pada daerah *ultra violet* (UV) dan turun drastis menjadi sekitar 2,5. Sedangkan pada rentang cahaya tampak, nilai indeks bias film ZnO relatif konstan, yaitu sekitar 2.



Gambar 6. Spektrum reflektansi film ZnO



Gambar 7. Nilai indeks bias film ZnO terhadap panjang gelombang

Nilai indeks bias ditentukan oleh kerapatan film, dengan nilai indeks bias sebesar sekitar 2 pada spektrum

cahaya tampak mengindikasikan bahwa film yang terbentuk memiliki kerapatan yang cukup tinggi. Proses densifikasi diyakini terjadi pada proses pemanasan sampel film ZnO pada suhu 500 °C selama 3 jam. Nilai indeks bias secara langsung mempengaruhi karakteristik transmitansi dan reflektansi sampel film.

## KESIMPULAN

Berdasarkan analisis *XRD* Lapisan ZnO yang dibuat dengan teknik *spin-coating* melalui proses *sol-gel* dan perlakuan *annealing* pada 500°C, memiliki struktur polikristal heksagonal (*wurtzite*) dengan parameter kisi  $a = 3,290 \text{ \AA}$  dan  $c = 5,2531 \text{ \AA}$ . Hasil analisis *XRD* juga diperoleh ukuran kristal rata-rata film ZnO sebesar 29,554 nm, bersesuaian dengan nilai *FWHM* pada pola difraksi (difraktogram). Morfologi film dengan *SEM* memperlihatkan distribusi kristalit berbentuk lempengan-lempengan (*disks*) yang tidak seragam dan tidak beraturan akibat proses *annealing* pada sampel.

Hasil karakterisasi optik memperlihatkan film ZnO memiliki transmisi optik pada rentang cahaya tampak di atas 50%, sebaliknya reflektansinya rendah pada rentang cahaya tampak. Nilai indeks bias pada rentang cahaya tampak adalah sekitar 2 dan meningkat drastis hingga bernilai 5 pada daerah *ultra violet*. Nilai celah pita optik film ZnO diperoleh dari ekstrapolasi kurva plot  $(\alpha h\nu)^2$  terhadap  $h\nu$  sebesar 3,2 eV.

## DAFTARACUAN

- [1]. A.E. RAKHSHANI, *Appl. Phys. A* (81) (2005) 1497
- [2]. J. WENG, Y.J. ZHANG, G. HAN, Y. ZHANG, L. XU, J. XU, X. HUANG AND K. CHEN, *Thin Solid Films* **478** (2005) 25
- [3]. J. CEMBRERO, A. ELMANOUNI, B. HARTITI, M. MOLLAR and B. MARI, *Thin Solid Films* 451-452 (2004) 198
- [4]. B.Q. CAO, W.P. CAI, Y. LI, F.Q. SUN and L. ZHANG, *Nanotechnology* **16** (2005) 1734
- [5]. Y. LIN, J. XIE, H. WANG, Y. LI, C. CHAVEZ, S. Y. LEE, S.R. FOLTYN, S.A. CROOKER, A.K. BURREL, T.M. MCLESKEY and Q.X. JIA, *Thin Solid Films* **492** (2005) 101
- [6]. S.B. MAJUMDER, M. JAIN, P.S. DOBAL and R.S. KATIYAR, *Materials Science and Engineering B* (103) (2003) 16
- [7]. K. RAMAMOORTHY, C. SANJEEVIRAJA, M. JAYACHANDRAN, K. SANKARANARAYANAN, P. MISRA and L.M. KUKREJA, *Current Applied Physics* **6** (2006) 103
- [8]. X.L. CHENG, H. ZHAO, L.H. HUO, S. GAO and J.G. ZHAO, *Sensors and Actuators B* (102) (2004) 248
- [9]. Y. MA, W.L. WANG, K.J. LIAO and C.Y. KONG, *Journal of Wide Bandgap Materials*, **10** (2) (2002) 113

- [10]. R.E. MAROTTI, D.N. GUERRA, C. BELLO, G. MACHDO and E.A. DALCHIELE, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **82** (2004) 85
- [11]. L.L. ZHANG and G.Q. TANG, *Optical Materials*, **27** (2004) 217
- [12]. T. KAWAHARA, T. ISHIDA, H. TADA, N. TOHGE and S. ITO, *Journal of Materials Science Letters*, **21** (2002) 1423
- [13]. P.K. Ghosh, S. Das and K.K. Chattopadhyay, *J. of Nanoparticle Research*, 2005
- [14]. M.Y. NADEEM and W. AHMED, *Turk J. Phy.*, **24** (2000), 651-659
- [15]. Z.B. FANG, Z.J. YAN, Y.S. TAN, X.Q. LIU and Y.Y. WANG, *Applied Surface Science*, **241** (2005) 303
- [16]. P. YAKUPHANOGLU, M. ARSLAN, M. KUCUKISLAMOGU, M. ZENGİN. *Solar Energy* (2004)
- [17]. D.B. CULLITY, *Element of X-Ray Diffraction, Third Edition*, Prentice Hall Inc., New Jersey , USA, (2001)